#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

#### (43) 国際公開日 2001 年1 月18 日 (18.01.2001)

 $\mathbb{PCT}$ 

## (10) 国際公開番号 WO 01/04204 A1

(51) 国際特許分類7:

C08L 101/00, C09K 21/12

C08K 5/527,

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/04004

(22) 国際出願日:

2000年6月19日(19.06.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

JP

(30) 優先権データ:

特願平11/195958 1999年7月9日(09.07.1999)

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 大八化学 工業株式会社 (DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒541-0046 大阪府大阪市中央区平 野町1丁目8番13号 平野町八千代ビル Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 徳安範昭 (TOKUYASU, Noriaki) [JP/JP]; 〒477-0032 愛知県東 海市加木屋町小家ノ脇5-420 Aichi (JP). 亀田勝美 (KAMEDA, Katumi) [JP/JP]; 〒470-2103 愛知県知多 郡東浦町石浜芦間10-1 Aichi (JP).

(74) 代理人: 野河信太郎(NOGAWA, Shintaro); 〒530-0047 大阪府大阪市北区西天満5-1-3 南森町パークビル Osaka (JP).

/続葉有/

(54) Title: FLAME RETARDANTS FOR RESINS AND FLAME-RETARDED RESIN COMPOSITIONS CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称:樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物

$$\begin{array}{c} R_1 \setminus C H_2 O \setminus O \\ C \setminus C H_2 O \end{array} \stackrel{O}{\underset{PO-R_3}{\longrightarrow}} (I)$$

(57) Abstract: Flame retardants for resins, which contain as the principal component phosphorinane-type phosphates represented by general formula (I) (wherein  $R_1$  and  $R_2$  are each independently  $C_1$ - $C_6$  alkyl; and  $R_3$  is  $C_1$ - $C_{20}$  alkyl), and which can impart excellent flame retardance to resins without lowering in the physical properties inherent in the resins and are excellent in resistance to hydrolysis and free from halogen; and flame-retarded resin com-

positions excellent in mechanical characteristics.

(57) 要約:

本発明は、一般式(I):

(式中、 $R_1$  および $R_2$  は同一または異なって、炭素数  $1\sim 6$  のアルキル基を示し、 $R_3$  は炭素数  $1\sim 2$  0 のアルキル基を示す)で表されるホスホリナン構造を有するリン酸エステルを主成分として含有する樹脂用難燃剤に関する。本発明は、各種樹脂に添加した際に、樹脂本来の物性を低下させることなしに、樹脂に優れた難燃性を付与し、高い耐加水分解性を有する、ハロゲンを含有しない難燃剤および機械的特性に優れた難燃性樹脂組成物を提供する。

700 01/04204 A1

- (81) 指定国 (国内): CN, JP, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, のガイダンスノート」を参照。 DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開 類:

— 国際調査報告書

#### 明細書

## 樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物

#### 5 技術分野

本発明は、ホスホリナン構造を有するリン酸エステルを主成分とする 樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物に関する。

### 背景技術

25

- 10 ポリプロピレン、ポリスチレン、アクリロニトリルーブタジエンースチレン (ABS) 樹脂などの熱可塑性樹脂、およびポリウレタン、フェノール樹脂などの熱硬化性樹脂は、比較的安価に製造でき、かつ成形が容易であるなどの優れた特性を有する。このため、これらの樹脂は電子部品や自動車部品をはじめ生活用品全般にわたり広く使用されている。
- 15 しかしながら、樹脂自体が易燃性であるために、ひとたび火災が発生すると簡単に燃焼・消失する。特に、電気あるいは通信ケーブルのような公共施設での火災は、社会機能に多大な影響を与える。そこで、今日では電気製品、自動車の内装品、繊維製品など、樹脂の利用分野の一部では法律で難燃化が義務づけられている。この難燃規制としては、例えな、米国の電気製品におけるUL規格、自動車関係におけるFMVSS-302などが知られている。

樹脂に難燃性を付与するためには、一般に成形用樹脂組成物の調製時 に樹脂用難燃剤(以下、「難燃剤」と称する)を添加する方法が採用さ れている。難燃剤としては、無機化合物、有機リン化合物、有機ハロゲ ン化合物、ハロゲン含有有機リン化合物などがある。

上記の化合物のうち優れた難燃効果を発揮するのは、有機ハロゲン化

5

10

15

20

25



合物およびハロゲン含有有機リン化合物である。しかし、これらのハロゲンを含有する化合物は、樹脂成形時に熱分解してハロゲン化水素を発生する。これにより成形金型の腐食、樹脂自体の劣化、着色などの問題が起こる。また、ハロゲン化水素は毒性を有するため、作業環境を悪化させるばかりでなく、火災のような燃焼に際して、ハロゲンを含有する化合物からハロゲン化水素やダイオキシンのような有毒ガスを発生し、人体に悪影響を与える。

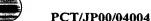
樹脂成形時などに生じる着色は、一般に脱ハロゲン反応により生じる リン酸や塩化水素、およびアミン共存下に生じるアミン塩酸塩に起因す るものと考えられている。

ハロゲンを含有しない難燃剤として、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化カルシウムなどの無機化合物がある。しかし、これらの無機化合物は難燃効果が著しく低く、充分な効果を得るためには多量に添加する必要があり、それにより樹脂本来の物性、特に樹脂成型品の機械的特性が損なわれる。

したがって、ハロゲンを含有しないで、かつ上記のような問題を生じない難燃剤の開発が強く求められている。

米国特許第5,750,601号には、ハロゲンを含有しない難燃剤 として、5,5-ジメチルー2-オキソー2-フェノキシー1,3,2-ジオキサホス ホリナンが記載されている。

しかし、上記の化合物は常温~樹脂の成形温度の範囲では固体の化合物であり、樹脂原料との混合および樹脂原料中への均一な分散が困難である。例えば、ポリウレタンフォームは、予め固体の難燃剤を分散させておいたポリオールとジイソシアネートとを縮合反応させて得られるが、ポリオール中の難燃剤が沈降して均一に分散しないという問題があった。また、難燃剤が固体であるために、成形用樹脂組成物の調製時において、





難燃剤を樹脂原料に加える際に、定量的な自動添加が困難で、取扱い難いという問題もあった。

### 発明の開示

5 本発明は、上記のような先行技術の欠点を解決するものであり、各種 樹脂に添加した際に樹脂本来の物性を低下させることなしに、樹脂に優 れた難燃性を付与し、高い耐加水分解性を有する、ハロゲンを含有しな い難燃剤および機械的特性に優れた難燃性樹脂組成物を提供することを 課題とする。

10 本発明者らは上記課題を解決するために鋭意研究の結果、特定のリン酸エステルを樹脂に配合することを見出し、本発明を完成するに到った。また、本発明の一般式 (I) で表されるリン酸エステルの中で、基R」および $R_2$  がメチル基で、かつ基 $R_3$  がメチル基である化合物は、例えば、潤滑油成分として知られているが、難燃剤として用いた場合に意外にも優れた効果が見出された。

かくして、本発明によれば、一般式(I):

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & C & H_2O \\
C & PO-R_3 \\
R_2 & C & H_2O
\end{array}$$
(I)

(式中、 $R_1$  および $R_2$  は同一または異なって、炭素数  $1 \sim 6$  のアルキル基を示し、 $R_3$  は炭素数  $1 \sim 2$  0 のアルキル基を示す)

20 で表されるリン酸エステル (以下、「リン酸エステル (I)」と称する) を含有する難燃剤が提供される。

また、本発明によれば、樹脂に、難燃剤として上記の難燃剤を含有してなる難燃性樹脂組成物(以下、「樹脂組成物」と称する)が提供される。

## 発明の実施の形態

本発明の難燃剤に含有されるリン酸エステルは、前記の一般式(I)で表される。

一般式 (III) において、 $R_1$  および $R_2$  で表される炭素数 $1\sim6$  のア

5 ルキル基としては、直鎖状または分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。 具体的には、メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシルのような直鎖状のアルキル基、および iso-プロピル、iso-ブ チル、sec-ブチル、 tert-ブチル、iso-ペンチル、 tert-ペンチル、 neo-ペンチル、iso-ヘキシルなどの分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。

10 中でも炭素数 1 ~ 4 の直鎖状または分岐鎖状のアルキル基が好ましく、 メチル基が特に好ましい。

 $R_3$ で表される炭素数  $1\sim 20$ のアルキル基としては、直鎖状または 分岐鎖状のアルキル基が挙げられ、中でも炭素数  $1\sim 18$ のアルキル基 が好ましい。具体的には、上記の $R_1$ 、 $R_2$ に例示したアルキル基に加

15 えて、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ドデシル、n-テトラデシル、n-ヘキサデシル、n-オクタデシルなどの直鎖状のアルキ ル基、ならびにメチルヘキシル、メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、 iso-デシル、iso-ドデシル、iso-テトラデシル、iso-ヘキサデシル、 iso-オクタデシルなどの分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。中でも炭

20 素数 1~4の直鎖状または分岐鎖状の低級アルキル基が好ましく、n-プロピル基および n-ブチル基が特に好ましい。

 $R_3$  が低級アルキル基であるリン酸エステル(I)は、常温で液体で、かつ低粘度( $15\sim40$  c p s / 25  $^{\circ}$ C)であり、難燃剤として好ましい物性を有する。

25 リン酸エステル (I) の具体例としては、製造例1および製造例2に 記載する化合物が挙げられる。

20

25



本発明のリン酸エステル(I)は、製造時の副反応物や未反応原料などの不純物を含有することもあるが、それらの不純物が樹脂組成物の耐熱性および難燃性に悪影響を及ぼさないものであれば、改めて精製することなく、難燃剤として使用してもよい。

5 本発明の難燃剤は、2種以上のリン酸エステル (I)の混合物であってもよい。

本発明の樹脂組成物は、樹脂に上記の難燃剤を含有してなる。

樹脂としては、塩素化ポリエチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、スチレン系樹脂、耐衝撃性ポリスチレン、ポリ塩化ビ 10 ニル、アクリロニトリルー塩素化ポリエチレンースチレン (ACS) 樹脂、アクリロニトリルースチレン (AS) 樹脂、ABS樹脂、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル、ポリメチルメタクリレート、ポリアミド、ポリエステル、ポリカーボネートなどの熱可塑性樹脂、およびポリウレタン、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹15 脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステルなどの熱硬化性樹脂が挙げられる。これらの樹脂は2種以上の混合体であってもよい。

上記の樹脂の中でも、ハロゲンを含有しない樹脂が好ましい。

すなわち、本発明のハロゲンを含有しない難燃剤と、同様にハロゲン を含有しない樹脂とを組み合わせることにより、様々な悪影響を及ぼす 有毒なハロゲン含有ガスの発生を完全に克服することができる。

また、ハロゲンを含有しない樹脂の中でも、ポリウレタンが特に好ま しい。

ボリウレタンは、ボリオールとジイソシアネートとの縮合反応によって製造され、難燃剤はポリオールに分散させて用いられる。本発明の難燃剤は低粘度の液体であり、ポリオール中に均一に分散させることができ、しかも本来高粘度であるポリオールの粘度を低下させることができ

るので、沈降や分散不良などの問題が解消される。

また、本発明の難燃剤は、樹脂原料または成形用樹脂組成物の調製時 に定量的に自動添加でき、難燃剤とポリオールとをプレミックスしたも のを保存できるので、保存性および作業性が向上する。

5 得られるポリウレタンは、難燃剤が均一に配合されているので、優れ た難燃性が長期間にわたり維持される。

本発明の樹脂組成物中の難燃剤の配合量は、リン酸エステル(I)の 種類や樹脂の種類、成形品の用途や要求される性能(例えば、難燃性) に応じて適宜選定することができる。

10 難燃剤としてのリン酸エステル(I)の配合量は、通常、樹脂100 重量部に対して0.05重量部以上であればよく、好ましくは0.1~50重量部、さらに好ましくは5~20重量部である。リン酸エステル(I)の配合量が0.05重量部未満の場合には、樹脂に充分な難燃性を付与できないので好ましくない。また、リン酸エステル(I)の配合量が50重量部を超える場合には、樹脂の物性低下につながるため好ましくない。なお、樹脂がポリウレタンの場合には、ポリウレタンを製造する工程に難燃剤を添加することが望ましい。その際の難燃剤の添加量は、原料となるポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対して、リン酸エステル(I)を上記の範囲で配合すればよい。

20 本発明の樹脂組成物には、必要に応じて難燃性を付与すべき樹脂の物性を損なわない範囲で、必要に応じて他の樹脂用添加剤が配合されていてもよい。

そのような樹脂用添加剤としては、リン酸エステル(I)以外の難燃剤、酸化防止剤、無機充填剤、帯電防止剤、紫外線吸収剤、滑剤などが挙げられる。

25

リン酸エステル (I) 以外の難燃剤としては、リン酸トリメチル、リ

5

ン酸トリエチル、リン酸トリブチル、リン酸トリフェニル、リン酸トリクレジル、リン酸クレジルジフェニル、リン酸トリ2-エチルヘキシルなどの有機リン化合物;メラミン、ベンゾグアナミン、尿素、ポリリン酸アンモニウム、ピロリン酸アンモニウムなどの窒素含有化合物;および水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ホウ酸亜鉛などの金属化合物などが挙げられる。

酸化防止剤としては、トリフェニルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、ビス (2,4-ジ-tert-ブチルフェニル) ペンタエリスリトールジホスファイト およびテトラキス (2,4-ジ-tert-ブチルフェニル) ー4,4-ジフェニレンホスホナイトなどの三価のリン化合物のようなリン系化合物;ヒドロキノン、2,5-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、オクチルヒドロキノン、2,5-tert-アミルヒドロキノンなどのヒドロキノン系化合物;フェノール系 化合物;アミン系化合物;硫黄系化合物などが挙げられる。

15 無機充填剤としては、マイカ、タルク、アルミナなどが挙げられる。 帯電防止剤としては、カチオン系界面活性剤、非イオン系界面活性剤 などが挙げられる。

紫外線吸収剤としては、ベンゾフェノン系化合物、サリチレート系化 合物、ベンゾトリアゾール系化合物などが挙げられる。

20 滑剤としては、脂肪酸系化合物、脂肪酸アミド系化合物、エステル系 化合物、アルコール系化合物などが挙げられる。

本発明の樹脂組成物の製造に際して、各成分の配合順序や混合方法は特に限定されない。

例えば、樹脂組成物は、難燃剤、樹脂および必要に応じて他の樹脂用 25 添加剤を公知の方法で混合、溶融混練することにより得られる。混合お よび溶融混練には、単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、二

ーダーミキサーなど、汎用の装置を単独または組み合わせて用いること ができる。

また、樹脂を塊状重合により製造する場合には、①単量体の供給時、 ②塊状重合の反応終期および③重合体の成形時のいずれの時期に難燃剤 を添加してもよい。

得られた樹脂組成物を、さらに公知の方法で成形加工することにより、 所望の形状、例えば、板状、シート状またはフィルム状の成形体を得る ことができる。

本発明のリン酸エステル(I)は、例えば、米国特許第5,750,10601号に記載された方法(但し、フェノールに代えて脂肪族飽和アルコールを用いる)により製造することができる。

参考のため、以下にリン酸エステル(I)の製造方法について記載する。

## (製造方法1)

5

15 まず、オキシ塩化リンと、オキシ塩化リン1モルに対して0.9~1. 2モル (好ましくは0.95~1.05モル) のジオール系化合物とを 反応させて、一般式 (II):

$$R_1 \setminus C H_2O \setminus_{P-C1}^{O}$$

$$R_2 \setminus C H_2O \setminus_{C H_2O}^{O}$$

(式中、 $R^1$  および $R^2$  は同一または異なって、炭素数  $1\sim 6$  のアルキ 20 ル基を示す)で表される化合物を得る。

ジオール系化合物としては、2,2-ジアルキルー1,3-プロパンジオールが好ましい。具体的には、2,2-ジメチルー1,3-プロパンジオール(=ネオペンチルグリコール)、2-メチルー2-エチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジエチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジエチルー1,3-プロパンジオール

5



ンジオール、2,2-ジー $\sec$ -ブチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジー $\operatorname{tert}$ -ブチルー1,3-プロパンジオール、2-エチルー2-n-ブチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジーn-ペンチルー1,3-プロパンジオール、2,2-ジーn-オクチルー1,3-プロパンジオールなどが挙げられるが、価格面や入手し易さの点でネオペンチルグリコールが特に好ましい。

生成する化合物 (II) が固体であるため、反応を円滑に進め、生成物の結晶化による取扱い難さを防ぐ意味で、この反応は有機溶媒中で行うのが好ましい。

有機溶媒としては、不活性な有機溶媒、すなわち、オキシ塩化リン、 10 ジオール系化合物および反応中に副生する塩化水素と副反応を伴わない ものが好ましい。

具体的には、ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、ベンゼン、トルエン、キシレン、石油スピリットなどの炭化水素系溶媒、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、トリクロロエタン、テリラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼンなどのハロゲン含有炭化水素系溶媒、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、1,4-ジオキサン、エチレングリコールジエチルエーテルなどのエーテル系溶媒などが挙げられ、中でもトルエン、1,2-ジクロロエタンおよび1,4-ジオキサンが好ましく、これらの中でも1,4-ジオキサンが特に好20 ましい。

有機溶媒の使用量は特に限定されないが、ジオール系化合物に対して 35~70重量%程度が好ましい。

反応は、ジオール系化合物と有機溶媒との混合物を攪拌しながら、これにオキシ塩化リンを添加して行うのが好ましい。

25 反応温度は0~100℃、好ましくは40~80℃である。反応温度 が0℃未満の場合には、反応が充分に進行しないので好ましくない。ま

た、反応温度が100℃を超える場合には、生成する化合物(II)が分 解して着色することがあるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常3~8時間程 度である。

 副生する塩化水素は、公知の方法、例えば窒素トッピング法のような 減圧処理により除去することができる。減圧処理の条件は有機溶媒が還 流しない程度が好ましく、例えば、40~90℃、好ましくは50~8 0℃で圧力200~500Torrの範囲である。

次に、化合物 (II) と、理論量~理論量の20重量%過剰量 (好まし 10 くは理論量の10~15重量%過剰量)のアルコールとを反応させて、 リン酸エステル (I) を得る。

アルコールの理論量は、次式から算出される。

15

25

アルコールの理論量= (A×B×C) / (35.5×100)

〔式中、Aは化合物(II)の重量(g)であり、Bは化合物(II)の塩素含有率(重量%)であり、Cはアルコールの分子量である〕

アルコールの使用量が理論量未満の場合には反応が完結せず、またアルコールの使用量が20重量%を超える場合には未反応のアルコールが 反応系内に残存するので、経済的に好ましくない。

アルコールとしては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-20 プロパノール、1-ブタノール、sec-ブタノール、 tert-ブタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノールが挙げられ、中でも1-プロパノールおよび1-ブタノールが特に好ましい。

この反応は、反応時間を短縮し、かつ生成物の純度を向上させるため に、酸受容体 (例えば、トリエチルアミン、トリブチルアミンなどの塩 基) の存在下で行うのが好ましい。

酸受容体の使用量は、理論量~理論量の20重量%過剰量の範囲内、

好ましくは10~15重量%過剰量の範囲内である。

酸受容体の理論量は、次式から算出される。

酸受容体の理論量= (A×B×D) / (35.5×100)

〔式中、Aは化合物 (II) の重量 (g) であり、Bは化合物 (II) の塩 5 素含有率 (重量%) であり、Dは酸受容体の分子量である〕

反応は前段の反応から連続して行うことができ、具体的には、有機溶媒を含む前段の反応混合物を攪拌しながら、アルコール、あるいはアルコールと酸受容体との混合物を添加すればよい。

反応温度は20~60℃、好ましくは30~50℃である。反応温度 10 が20℃未満の場合には、反応の進行が非常に遅くなるので好ましくない。また、反応温度が60℃を超える場合には、副反応が起こり、生成 物の純度が低下するなどの悪影響が考えられるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常2~7時間程 度である。

15 この反応により副生する塩化水素は、酸受容体に取り込まれて塩を形成する。この塩は、反応終了後に反応混合物を洗浄することにより除去することができる。具体的には、得られた反応混合物を反応容器から回収し、洗浄、脱水などの精製処理を行う。残留水や低沸点成分を除去するためには、精製処理として水蒸気蒸留を行うのが好ましい。

## 20 (製造方法2)

まず、アルコールと、アルコール1モルに対して1.0~5.0モル (好ましくは1.1~3.0モル) のオキシ塩化リンとを反応させて、一般式 (III) :

$$\begin{array}{c}
C1 & O \\
PO-R_3 & (III)
\end{array}$$

(式中、 $R_3$ は炭素数  $1\sim 20$  のアルキル基を示す)で表される化合物を得る。

- 5 温度が-20℃未満の場合には、反応が充分に進行しないので好ましくない。また、反応温度が50℃を超える場合には、副生する塩化水素とアルコールが反応して、塩化アルキル(アルキルクロリド)と水が生成し、この水により化合物(III)およびオキシ塩化リンの分解が起こるので好ましくない。
- 10 反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常3~8時間程度である。

副生する塩化水素は、公知の方法、例えば窒素トッピング法のような 減圧処理により除去することができる。減圧処理の条件は、例えば、0 $\sim 20\%$ 、好ましくは $5\sim 10\%$ で圧力 $10\sim 200$  Torrの範囲で ある。

化合物 (III) の分解温度が約50℃であるので、上記の温度条件は すべて50℃以下に設定するのが好ましい。

また、系内に残存する未反応のオキシ塩化リンは、次工程の反応においてジオール系化合物と副反応を起こして、生成物の純度が低下するなどの問題があるので、反応終了後に未反応のオキシ塩化リンを除去するのが好ましい。

次に、化合物 (III) と、理論量~理論量の20重量%過剰量 (好ましくは理論量の10~15重量%過剰量) ジオール系化合物とを反応させて、リン酸エステル (I) を得る。

25 ジオール系化合物の理論量は、次式から算出される。 ジオール系化合物の理論量

15

20



 $= (E \times F \times G) / [2 \times (35.5 \times 100)]$ 

〔式中、Eは化合物 (III) の重量 (g) であり、Fは化合物 (III) の塩素含有率 (重量%) であり、Gはジオール系化合物の分子量である〕

ジオール系化合物が固体であるため、反応を円滑に進め、生成物の結 5 晶化による取扱い難さを防ぐ意味で、この反応は有機溶媒中で行うのが 好ましい。

ジオール系化合物および有機溶媒としては、前記の製造方法 1 と同様のものが挙げられる。有機溶媒の使用量は特に限定されないが、ジオール系化合物に対して 3 5 ~ 7 0 重量%程度が好ましい。

10 また、この反応は、反応時間を短縮し、かつ生成物の純度を向上させるために、前記の製造方法1と同様の酸受容体の存在下で行うのが好ましい。

酸受容体の使用量は、理論量~理論量の20重量%過剰量の範囲内、 好ましくは10~15重量%過剰量の範囲である。

15 該酸受容体の理論量は、次式から算出される。

酸受容体の理論量= (E×F×C) / (35.5×100)

〔式中、Eは化合物(III)の重量(g)であり、Fは化合物(III)の 塩素含有率(重量%)であり、Cはアルコールの分子量である〕

反応温度は20~60℃、好ましくは30~50℃である。反応温度 20 が20℃未満の場合には、反応の進行が非常に遅くなるので好ましくない。また、反応温度が60℃を超える場合には、副反応が起こり、生成物の純度が低下するなどの悪影響が考えられるので好ましくない。

反応時間は、反応温度などの条件により異なるが、通常 2 ~ 7 時間程度である。

25 この反応により副生する塩化水素は、酸受容体に取り込まれて塩を形成する。この塩は、反応終了後に反応混合物を洗浄することにより除去

することができる。具体的には、得られた反応混合物を反応容器から回収し、洗浄、脱水などの精製処理を行う。残留水や低沸点成分を除去するためには、精製処理として水蒸気蒸留を行うのが好ましい。

## 5 実施例

本発明を以下の製造例および実施例によりさらに具体的に説明するが、 これらの実施例は本発明の範囲を限定するものではない。なお、実施例 において特に断りのない限り「部」はすべて「重量部」を示す。

## 10 製造例 1

25

攪拌機、温度計、滴下漏斗および水スクラバーを連結したコンデンサーを備えた1リットルの4つロフラスコに、ネオペンチルグリコール204.0g(2.0モル)、1,4-ジオキサン102.0g(ネオペンチルグリコールに対して50重量%)を充填し、攪拌した。次いで、恒温装置を用いて混合物を50℃に加熱し、この温度を維持しながら、滴下漏斗からオキシ塩化リン307.0g(2.0モル)を3時間かけて添加した。添加後、反応混合物を50℃で2時間攪拌し、さらに反応混合物を加熱して1時間かけて75℃にした。次いで、真空度250Torr、75℃で2時間かけて副生した塩化水素を除去して、R₁およびR₂がメチルである化合物(II) 471.0gを得た。この化合物の塩素含有量は15.07%であった。

次いで、上記の反応混合物を50 ℃に冷却し、この温度を維持しながら、この反応混合物にトリエチルアミン222.1g(2.2 モル)と1-プロパノール132.0g(2.2 モル)との混合溶液354.1gを 2時間かけて添加した。添加後、反応混合物の温度を50 ℃に維持しながら 3時間攪拌した。



得られた反応混合物を水洗してトリエチルアミン塩酸塩を除去し、さらに加熱真空下で水および低沸点成分を除去して、淡黄色の液体395.2gを得た。

得られた生成物を元素分析し、粘度を測定した。

5 生成物は、下記の化学構造を有する化合物(1)であった。 生成物の元素の分析値とその理論値、粘度および収率を表1に示す。

#### 製造例 2

1-プロパノールに代えて1-ブタノール162.8g(2.2モル)

10 を使用する以外は製造例 1 と同様にして、淡黄色の液体 4 2 1. 8 gを 得た。

得られた生成物について、製造例1と同様にして、元素分析と粘度測 定を行った。

生成物は、下記の化学構造を有する化合物(2)であった。

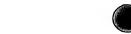
15 生成物の元素の分析値とその理論値、粘度および収率を表1に示す。

表 1

	組成	上段:分析値 下段:理論値		粘度 (cps/25℃)	収率 (%)
	P %	С%	Н%		
化合物(1)	14.88	46.14	8.16	21	95.0
	14.90	46.15	8.17		
化合物(2)	13.94	48.63	8.54	26	95.0
	13.96	48.65	8.56		

5

15



以下の実施例では、本発明の難燃剤である化合物(1)および化合物(2)に加えて、比較例として公知のハロゲンを含有しない難燃剤である化合物(A)および化合物(B)について、それらの性能を評価した。

化合物(A):リン酸トリエチル

化合物(B):リン酸クレジルジフェニル

# 実施例1 (難燃剤の耐加水分解性能の評価)

製造例1および製造例2でそれぞれ得られた化合物(1)および化合物(2)、ならびに化合物(A)および化合物(B)について、耐加水 10 分解性能の評価として、ASTM D-2169およびMIL III-1 9457に準じて酸価を測定した。

耐圧試料瓶に試料として試験化合物75gと蒸留水25gを入れて密栓した後、予め93℃に調整した加水分解装置(1分間に5回転して試料瓶中の内容物を混合する機能を有する)に耐圧試料瓶を取り付け、同温度で48時間保持し、室温まで冷却した。

耐圧試料瓶中の混合物を分液漏斗に移し、静置して水相を回収した。 次いで、油相に洗浄水として蒸留水約100gを加えて軽く振盪した後、 静置して水相を回収した。分離した水相を最初の水相と混合した。同様 にして、さらに洗浄水が中性になるまで洗浄操作を繰り返した。

20 回収されたすべての水相(洗浄水を含む)の全酸価を測定した。 各化合物について得られた結果を表2に示す。

表 2

難燃剤	全酸価 (KOH mg/g)		
化合物(1)	3 2		
化合物(2)	2 7		
化合物(A)	8 3 7		
化合物(B)	0.2		

実施例2 (難燃性軟質ポリウレタンフォームの製造)

配合成分

ポリオール (商品名:MN-3050 ONE、三井化学株式会社製)

100部

5 ジイソシアネート(商品名:TDI 80/20、三井化学株式会社製)

59.5部

シリコン油 (商品名:F-242T、信越化学株式会社製)

1.2部

錫系触媒 (商品名: スタン BL、三共有機合成株式会社製)

0.3部

10 アミン系触媒(商品名:カオライザーNo.1、花王株式会社製)

0.1部

水

5.0部

ジクロロメタン

5.0部

難燃剤(ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対 15 する配合量、表3に記載)

上記の配合成分を用い、次のようにワンショット法により軟質ウレタン発泡体を製造した。

まず、ボリオール、シリコン油、触媒、ジクロロメタン、水および難燃剤を配合し、回転数3000rpmの攪拌機で1分間攪拌して均一に20 混和した。次いで、ジイソシアネートを加えてさらに回転数3000rpmで5~7秒間攪拌後、内容物を断面が正方形のボール箱に手早く注いだ。直ちに発泡が起こり、数分後に最大容積に達した。この発泡体を80℃の炉内で30分間硬化させた。得られた発泡体は白色軟質気泡型セル組織であった。



実施例3 (難燃性硬質ポリウレタンフォームの製造)

#### 配合成分

ポリオール (商品名: SU-464、三井化学株式会社製)

100部

ジイソシアネート (商品名:M-200 、三井化学株式会社製)

5

192.2部

シリコン油 (商品名: SH-193、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製) 2.0部

錫系触媒 (商品名:スタンBL、三共有機合成株式会社製)

0.1部

10 アミン系触媒 (商品名:カオライザーNo.3、花王株式会社製)

0.7部

水

20

5.0部

難燃剤(ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する配合量、表4に記載)

15 上記の配合成分を用い、次のようにワンショット法により硬質ウレタン発泡体を製造した。

まず、ボリオール、シリコン油、触媒、水および難燃剤を配合し、回転数3000rpmの攪拌機で1分間攪拌して均一に混和した。次いで、ジイソシアネートを加えてさらに回転数3000rpmで5~7秒間攪拌後、内容物を断面が正方形のボール箱に手早く注いだ。直ちに発泡が起こり、数分後に最大容積に達した。得られた発泡体は白色硬質気泡型セル組織であった。

実施例4 (難燃性軟質ポリウレタンフォームの性能評価)

25 実施例2で得られた難燃性軟質ポリウレタンフォームの物性を下記の 規格または操作により測定した。 ①密度(kg/m³)

JIS K-7222に準じて測定した。

②25%硬さ(kgf)

JIS K-6401に準じて測定した。

#### 5 ③難燃性

10

15

FMVSS-302 (軟質ポリウレタンフォームに対する難燃性試験方法) に準じて評価した。

#### 評価基準

NB:標線A (着火点より38mm) 以内で自消

SE:標線A~標線B(着火点より38~292mm)で自消

BN:標線B (着火点より292mm) 以上燃焼

#### ④変色性

試験片 (5×5×1 c m³) を 1 2 0 ℃の恒温槽内に入れ、 2 4 時間 保持した。その後、試料の変色度合い (Y I) を色差計を用いて測定し て変色性とした。

得られた結果を表3に示す。

表 3

評価番号	難燃剤	使用量* (部)	密 度 (kg/m³)	25%硬さ (kgf)	難燃性	変色性 (YI)
1	化合物 (1)	5.6 (9)	2 5	1 0	NΒ	3 0
2	化合物 (2)	6.3	2 5	1 0	NΒ	3 0
3	化合物 (A)	6.3	2 5	1 0	SE	8 0
4	化合物 (B)	6.3	2 5	1 0	BN	3 0

\*ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する配合量(ポリオール100重量部に対する配合量)

実施例5 (難燃性硬質ポリウレタンフォームの性能評価)

実施例3で得られた難燃性硬質ポリウレタンフォームの物性を下記の規格または操作により測定した。

①密度 (kg/m³)

JIS K-7222に準じて測定した。

②曲げ強度 (kgf/cm²)

JIS K-7220に準じてを測定した。

## ③難燃性

5

JIS A-9514 (硬質ポリウレタンフォームに対する難燃性

10 試験方法)に準じて測定した。

得られた結果を表4に示す。

難燃性 曲げ強度 密度 使用量\* 難燃剤 評価番号 (mm) (kgf/cm<sup>2</sup>)  $(kg/m^3)$ (部) 36.7 2 3 2 3.4 化合物 5 (10)(1)2 38.6 3 2 4. 1 化合物 6 (12)(2)39.6  $\overline{2}$ 3 2 化合物 7 (8) (A) 全焼  $\overline{2}$ 3 2 4. 1 化合物 8

表 4

\*ポリオールとジイソシアネートとの合計量100重量部に対する

配合量 (ポリオール100重量部に対する配合量)

(12)

(B)

15

表3および表4の結果から、次のことがわかる。

①本発明の難燃剤は、従来のハロゲンを含有しない難燃剤に比べて少量の添加で、樹脂本来の物性を低下させることなしに、優れた難燃性を付与できる。

20 ②本発明の樹脂組成物 (ポリウレタンフォーム) は, 耐変色性に優れ



ている。

5

10

15

20

一般に、樹脂組成物の変色(着色)は、難燃剤自体が加水分解したときに生じる化合物によるものと考えられている。したがって、本発明の 難燃剤の優れた耐加水分解性が樹脂組成物の変色の抑制に寄与している ものと考えられる。

本発明の難燃剤は、各種樹脂と混合したときに樹脂本来の物性を低下させることなしに、優れた難燃性を付与することができる。また、本発明の難燃剤はハロゲンを含まず、樹脂加工時や燃焼に際して有毒ガスを発生しないので、環境に対して負荷をかけることなく、人体に悪影響を与えない。

また、本発明の難燃剤は室温において低粘度の液体であり、樹脂への 分散性が良好で、特にポリウレタンに対して良好な相溶性を発揮する。 さらに、本発明の難燃剤は耐加水分解性にも優れているので、樹脂組成 物を変色させることがなく、耐久性を低下させることがない。

本発明の樹脂組成物は、VTR、分電盤、テレビ、エアコンなどの家庭電化製品、パソコン、プリンター、ファクシミリ、電話などのOA機器、コネクタ、スイッチ、モーター部品などの電気材料、コンソールボクス、座席クッションなどの自動車部品、ならびに建築材料などに好適に使用することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 一般式(I):

$$R_{1} \setminus C H_{2}O \setminus O \cap R_{3}$$

$$R_{2} \setminus C H_{2}O \setminus C \cap R_{3}$$

$$(I)$$

- 5 (式中、 $R_1$ および $R_2$ は同一または異なって、炭素数  $1 \sim 6$ のアルキル基を示し、 $R_3$ は炭素数  $1 \sim 2$ 0のアルキル基を示す) で表されるリン酸エステルを含有する樹脂用難燃剤。
  - 2. 一般式 (I) における $R_1$  および $R_2$  が、炭素数  $1\sim 4$  の直鎖状または分岐鎖状のアルキル基である請求項 1 に記載の樹脂用難燃剤。
- 3. 一般式 (I) における $R_3$  が、炭素数  $1 \sim 4$  の直鎖状または分岐 鎖状のアルキル基である請求項 1 または 2 に記載の樹脂用難燃剤。
  - 4. 一般式(I)における $R_1$  および $R_2$  がメチル基であり、 $R_3$  が n-プロビル基または n-プチル基である請求項 1 に記載の樹脂用難燃剤。
- 5. 樹脂に、難燃剤として請求項1または2に記載の樹脂用難燃剤を 15 含有してなる難燃性樹脂組成物。
  - 6. 樹脂が、ハロゲンを含有しない樹脂である請求項5に記載の難燃 性樹脂組成物。
    - 7. 樹脂が、ポリウレタンである請求項6に記載の難燃性樹脂組成物。
- 8. 樹脂用難燃剤が、樹脂100重量部に対して0.1~50重量部 20 配合されてなる請求項5~7のいずれか1つに記載の難燃性樹脂組成物。



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 $\bigcirc$ 

International application No.

PCT/JP00/04004

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12							
According to	International Patent Classification (IPC) or to both nation	onal classification and IPC					
B. FIELDS	SEARCHED						
	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/16, C09K21/12						
Documentati	ion searched other than minimum documentation to the e	extent that such documents are included in	n the fields searched				
	ata base consulted during the international search (name ONLINE	of data base and, where practicable, sear	ch terms used)				
C DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT						
<u> </u>	Citation of document, with indication, where app	ropriate of the relevant passages	Relevant to claim No.				
Category*	EP, 779332, A1 (HOECHST AG),	optime, of me feet mit pussages					
A	08 July, 1997 (08.07.97), Claims & JP, 09-176376, A	1-8					
	& US, 5750601, A  JP, 6-321974, A (Daihachi Chemic	1-8					
A	22 November, 1994 (22.11.94), Claims & EP, 617042, A1 & US, 54017						
A	JP, 52-89685, A (Michigan Chem. 27 July, 1977 (27.07.77), Claims & US, 4049617, A & DE, 27018		1-8				
A	and the state of t						
Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.	·				
* Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date  "E" active document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed							
Date of the	Date of the actual completion of the international search 30 June, 2000 (30.06.00)  Date of mailing of the international search report 11 July, 2000 (11.07.00)						
Name and Jap	mailing address of the ISA/ anese Patent Office	Authorized officer					
Facsimile 1	No.	Telephone No.					

	WAS AND THE TARREST			100		
						>
the second second second second	and manipulate spaces the company of the space of the spa	entire that the supplier of th	Market and the selection of the selectio	heliannen minne lannen annen er er er en men.	-chique profesione to consider the	distriction of
						r



国際出願番号 PCT/JP00/04004

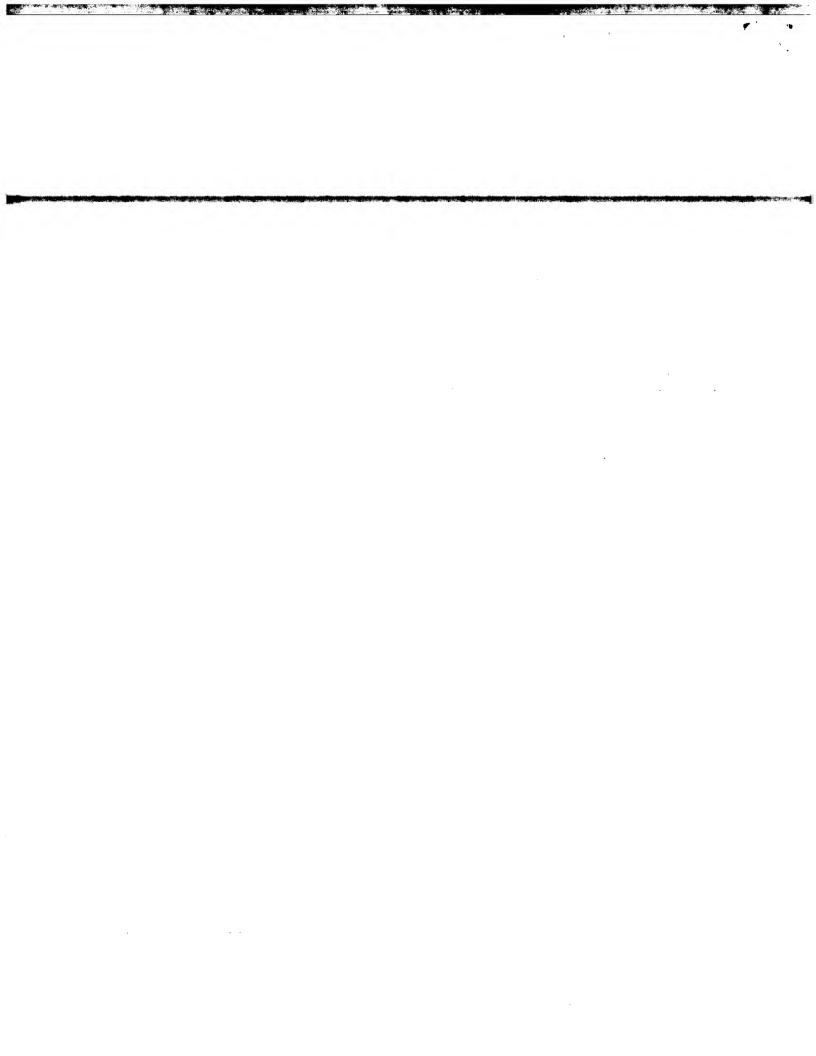
A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12						
B. 調査を行						
調査を行った	調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl' C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/16, C09K21/12					
最小限資料以外	<b>外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</b>		:			
国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、 N L I N E	調査に使用した用語)				
	ると認められる文献					
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	ときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の笹囲の番号			
А	EP, 779332, A1 (HOE) 997 (08. 07. 97), 特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A, & US, 5750601, A		1 – 8			
Α	JP, 6-321974, A (大八イ月. 1994 (22. 11. 94), 特許請求の範囲 & EP, 617042, A1 &		1 – 8			
X C概の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表された文献であって、出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願「&」同一パテントファミリー文献						
国際調査を完了した日 30.06.00 国際調査報告の発送日 1 107.00						
日本国	国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3495					

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の		関連する請求の範囲の番号
<i>カテゴリー</i> * A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイション) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A	1 — 8
A	JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4 月. 1988 (26. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-8

住所 (国名)

0 受理官庁記入櫚 0 - 1国際出願番号. 0-2 国際出願日 0-3 (受付印) 0-4 様式-PCT/RO/101 の特許協力条約に基づく国際 出願願書は、 0-4-1 右記によって作成された。 PCT-EASY Version 2.90 (updated 10.05.2000) 0-5 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されるこ この国際出願が特許 とを請求する。 0-6 出願人によって指定された受理 日本国特許庁(RO/JP) 0-7 出願人又は代理人の書類記号 DC3378PC T 発明の名称 樹脂用難燃剤およびそれを含有する難燃性樹脂組成物 TI 出願人 11-1 この欄に記載した者は 出願人である (applicant only) 11-2 右の指定国についての出願人で 米国を除くすべての指定国 (all designated States ある。 except US) II-4ja 名称 大八化学工業株式会社 II-4en Name DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD. II-5ja あて名: 541-0046 日本国 大阪府 大阪市中央区 平野町1丁目8番13号 平野町八千代ビル II-5en Address: Hiranomachi Yachiyo Bldg., 8-13, Hiranomachi 1-chome, chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 541-0046 Japan 11-6 国籍(国名) 日本国 JP 11-7 住所 (国名) 日本国 JP 11-8 電話番号 06-6201-1451 11-9 ファクシミリ番号 06-6201-1458 TII-1 その他の出願人又は発明者 111-1-1 この欄に記載した者は 出願人及び発明者である (applicant and inventor) 右の指定国についての出願人である。 III-1-2 米国のみ (US only) 111-1-4ja 氏名(姓名) 徳安 範昭 III-1-4en Name (LAST, First) TOKUYASU, Noriaki III-1-5ja あて名: 477-0032 日本国 愛知県 東海市 加木屋町小家ノ脇5-420 III-1-5en Address: 5-420, Koyanowaki, Kagiya-cho, Tokai-shi, Aichi 477-0032 Japan 111-1-6 国籍(国名) 日本国 JP 111-1-7

日本国 JP





特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

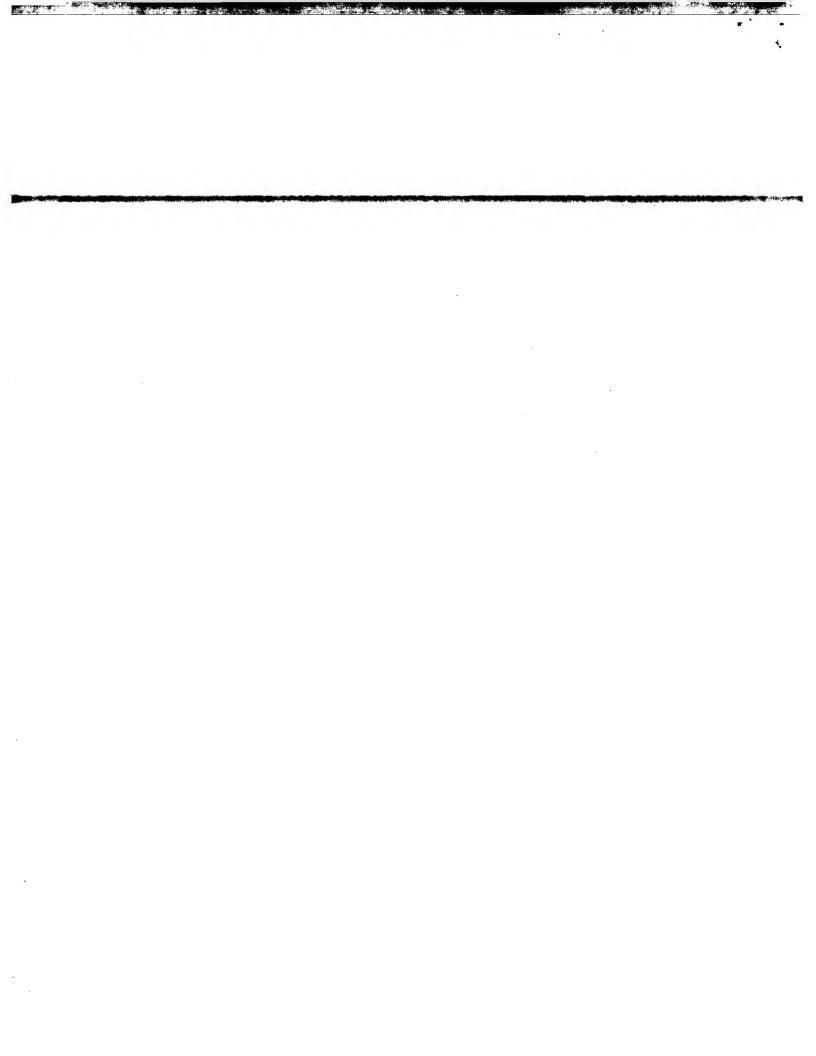
	***					
	111-2	その他の出願人又は発明者				
	III-2-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である(applicant and inventor)			
	111-2-2	右の指定国についての出願人で	米国のみ (US only)			
		ある。	(			
	III-2-4ja	氏名(姓名)	亀田 勝美			
	111-2-4en	Name (LAST, First)	KAMEDA, Katumi			
	III-2-5ja	あて名:	470-2103 日本国			
•	-	6) C11.	410~2103 口平国			
			愛知県 知多郡			
	111-2-5on	A 3 3	東浦町石浜芦間10-1			
	111-2-5611	Address:	10-1, Ishihama Ashima, Higashiura-cho,			
			Chita-gun, Aichi 470-2103			
			Japan			
	111-2-6	国籍(国名)	日本国 JP			
	111-2-7	住所(国名)	日本国 JP			
	TV-1	代理人又は共通の代表者、通知				
		のあて名				
		下記の者は国際機関において右	代理人(agent)			
	·	記のごとく出願人のために行動	C主人(dgcht)			
		する。				
	IV-1-1ja	氏名(姓名)	野河 信太郎			
	IV-1-1en	Name (LAST, First)	NOGAWA, Shintaro			
		あて名:	530-0047 日本国			
		<i>5</i> C 11.				
	IV-1-2en	1.11	西天満5丁目1-3 南森町パークビル			
	14-1-2611	Address:	MINAMIMORIMACHI PARK BLDG., 1-3, Nishitenma			
			5-chome, Kita-ku,			
			Osaka-shi, Osaka 530-0047			
			Japan			
	IV-1-3	電話番号	06-6365-0718			
	IV-1-4	ファクシミリ番号	06-6365-9279			
	V	国の指定	00 0000 0210			
	V-1	広域特許	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU			
		(他の種類の保護又は取扱いを	MC NL PT SE			
		求める場合には括弧内に記載す				
		る。)	及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国であ			
	V-2	FIH # #	る他の国			
	'	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを	CN JP US			
		求める場合には括弧内に記載す				
		水のる場合には拍弧内に記戦り   る。)				
•	V-5	る。/ 指定の確認の宣言				
	i	出願人は、上記の指定に加えて				
		、規則4.9(b)の規定に基づき、				
		特許協力条約のもとで認められ				
		る他の全ての国の指定を行う。				
	ł	ただし、V-6欄に示した国の指				
		定を除く。出願人は、これらの				
		追加される指定が確認を条件と				
		していること、並びに優先日か				
	ļ	ら15月が経過する前にその確認				
		がなされない指定は、この期間				
		の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされる				
	ļ	り下げられたものとみなされる。ことを宣言する。				
	V-6	ことを見言する。 指定の確認から除かれる国	to I (MONE)			
			なし(NONE)			
		先の国内出願に基づく優先権主				
		<b>張</b> 先の出願日	1000年07日00日(00 07 1000)			
			1999年07月09日(09.07.1999)			
		先の出願番号	<u>特願平11-195958</u>			
	V1-1-3	国名	<u>日本国 JP</u>			

					3	1	
							``
<b>**</b>	•		5.4				
						*	
				-	•		



特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

VI-2			
V1-2	優先権証明書送付の請求		
	上記の先の出願のうち、右記の	VI-1	
	番号のものについては、出願書		
	類の認証謄本を作成し国際事務		
	局へ送付することを、受理官庁		
	1に対して請求している。		
VII-1	特定された国際調査機関(ISA)	日本国特許庁(ISA/JP)	
VIII	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ
VIII-1	願書	4	
VIII-2	明細書	21	<b> </b>
V111-3	請求の範囲	17	
VIII-4	要約	1	dc3378pc.txt
VIII-5	図面	1	desstope.txt
VIII-7		0	<u></u>
V111-7	合計	27	
W	添付書類	添付	添付された電子データ
VIII-8	手数料計算用紙	<b>√</b>	-
VIII-9	別個の記名押印された委任状	<b>✓</b>	-
VIII-16	PCT-EASYディスク	_	フレキシブルディスク
VIII-17	その他	納付する手数料に相当す	-
		る特許印紙を貼付した書	
		面	
VI I I -17	その他		_
		国際事務局の口座への振	]_
VI II-17	7.074	込みを証明する書面	
VIII-17	その他	優先権書類送付請求書	_
	要約書とともに提示する図の番号		
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語(Japanese)	and the same of th
TX-1	提出者の記名押印		
		(基)	
		というには	
1X-1-1	氏名(姓名)	野河信太郎 图记到	
		受理官庁記入欄	
10-1	関係山域   シャキコレン・キャー	****	
10 1	国際出願として提出された書類 の実際の受理の日		
10-2	図面:		
10-2-1	受理された		
10-2-2	不足図面がある		•
10-3	「一下で回用がめる	<del></del>	
	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であっ		
	で補元する皆規又は凶固でめつ   アその後期関内に堪則されたよ		
	のの実際の受理の日(訂正日)	•	
10-4	てその後期間内に提出されたものの実際の受理の日(訂正日) 特許協力条約第11条(2)に基づ	····	
	く必要な補完の期間内の受理の	Y-	
	18		
10-5	出願人により特定された国際調	ISA/JP	
	査機関		
10-6	調査手数料末払いにつき、国際		



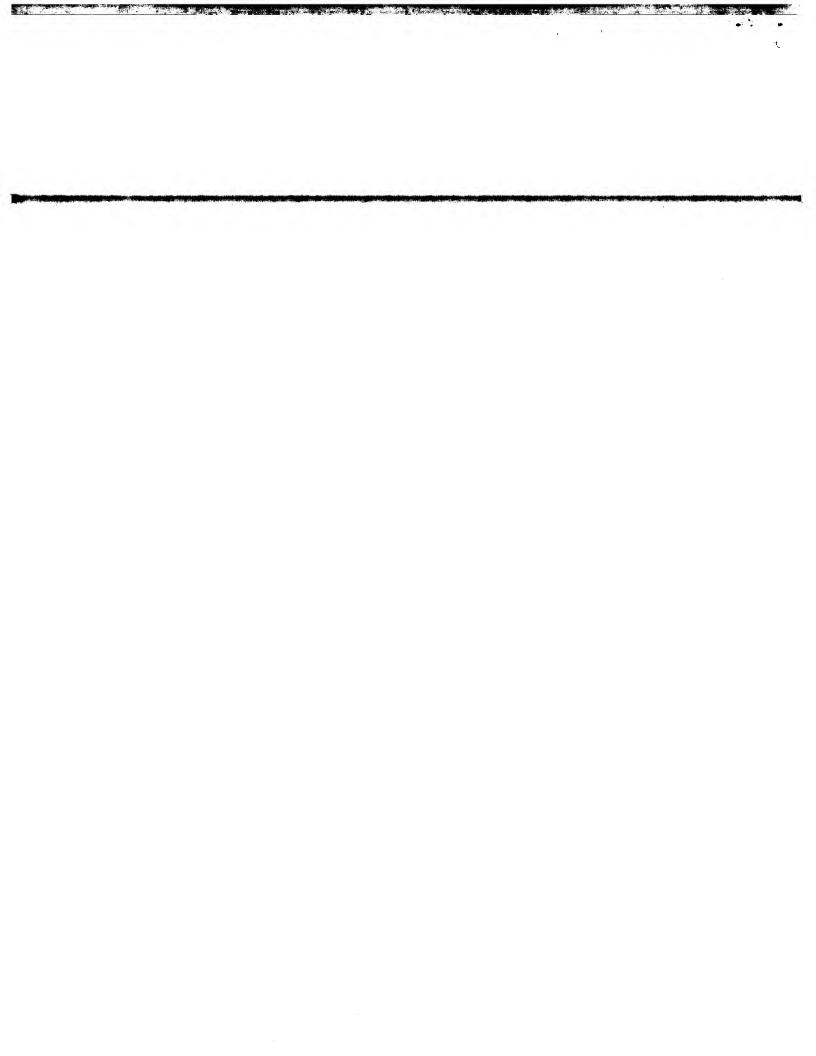
4/4

特許協力条約に基づく国際出願願書 原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月15日 (15.06.2000) 木曜日 11時27分20秒

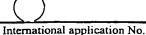
DC3378PC

## 国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日		 	
	<u></u>	 	 	



### INTERNATIONAL SEARCH REPORT



PCT/JP00/04004

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/16, C09K21/12 Int.Cl7 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAS ONLINE C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Relevant to claim No. Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Category\* EP, 779332, A1 (HOECHST AG), 08 July, 1997 (08.07.97), 1-8 Α Claims & JP, 09-176376, A Claims & US, 5750601, A JP, 6-321974, A (Daihachi Chemical Industry Co., LTD.), 1-8 Α 22 November, 1994 (22.11.94), Claims & US, 5401788, A & EP, 617042, Al JP, 52-89685, A (Michigan Chem. Corporation), 1-8 Α 27 July, 1977 (27.07.77), Claims & DE, 2701856, A & US, 4049617, A JP, 63-95249, A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 1-8 Α 26 April, 1988 (26.04.88), (Family: none) Claims Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex. later document published after the international filing date or Special categories of cited documents: priority date and not in conflict with the application but cited to document defining the general state of the art which is not understand the principle or theory underlying the invention considered to be of particular relevance document of particular relevance; the claimed invention cannot be earlier document but published on or after the international filing considered novel or cannot be considered to involve an inventive document which may throw doubts on priority claim(s) or which is step when the document is taken alone cited to establish the publication date of another citation or other document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is special reason (as specified) document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 11 July, 2000 (11.07.00) 30 June, 2000 (30.06.00) Name and mailing address of the ISA/ Authorized officer Japanese Patent Office Telephone No. Facsimile No.

(-)

### 国際調査報告

		<del></del>	<del></del>
	展する分野の分類(国際特許分類(IPC)) 1' C08K5/527, C08L101/0		
B. 調査を	行った分野		<del></del>
調査を行った	11つに刃野 最小限資料(国際特許分類(IPC)) 1 <sup>1</sup> C08K3/00-13/08, C08L	1/00-101/16, C09K21	/12
最小限資料以	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使ん	用した電子データベース(データベースの名称 NLINE	、調査に使用した用語)	
C. 関連する	ると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連する	ときけ その関連する第所の表示	関連する 請求の笕囲の番号
A	EP, 779332, A1 (HOE 997 (08. 07. 97), 特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A & US, 5750601, A	CHST AG) 8.7月.1	1 - 8
A	JP, 6-321974, A (大八月, 1994 (22, 11, 94), 特許請求の範囲 & EP, 617042, A1 &	,	1-8
Ⅸ C櫚の続き	にも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	川紙を参照。
ものの 「E」国以後にに 以後先権し 「L」優日本献頭 で、」ロ 「O」	のカテゴリー 種のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 種目前の出願または特許であるが、国際出願日 表されたもの 選に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 は他の特別な理由を確立するために引用する 組由を付す) る開示、使用、展示等に言及する文献 質目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表 て出願と矛盾するものではなく 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、 の新規性又は進歩性がないと考 「Y」特に関連のある文献であって、 上の文献との、当業者にとって、 よって進歩性がないと考えられ 「&」同一パテントファミリー文献	、発明の原理又は理 当該文献のみで発明 えられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに
国際調査を完了	した日 30.06.00	国際調査報告の発送日 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	.00
日本国 野	名称及びあて先  特許庁(ISA/JP)  便番号100-8915  千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保 月 電話番号 03-3581-1101	4 J 9552 内線 3495

### 国際調査報告

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の プライブリー・**		関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイション) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4	1 — 8
	月、1988 (26.04.88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 — 8
¥		

# PA NT COOPERATION TREAT

From the	INTERNATIO	NAL BUREAU

The International Rureau of WIDO	Authorized officer:
	rgyr (1979) r
Note 52.2(b).	
made before the expiration of 19 months from the priority (Rule 32.2(b).	date or, where Rule 32 applies, within the time limit under
was not	
2. The election X was	
<del>-</del>	<del></del>
a notice checking later election med with the interior	
in a notice effecting later election filed with the Interi	national Bureau on:
26 July 2000 (	26.07.00)
X in the demand filed with the International preliminar	
The designated Office is hereby notified of its election mad	de:
TOKUYASU, Noriaki et al	.4
Applicant:	.5
International filing date: 19 June 2000 (19.06.00)	Priority date: 09 July 1999 (09.07.99)
PCT/JP00/04004	DC3378PC
International application No.:	Applicant's or agent's file reference:
18 January 2001 (18.01.01)	in its capacity as elected Office
Date of mailing:	TATINGTON, VA 22202 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
	CP2/5C24 Arlington, VA 22202
(PCT Rule 61.2)	Office, PCT 2011 South Clark Place Room
NOTIFICATION OF ELECTION	US Department of Commerce United States Patent and Trademark
NOTIFICATION OF ELECTION	Commissioner US Department of Commerce
PCT	То:

34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

J. Zahra

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

<b>B</b> e-**	d		

EP · QS

PCT

# 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 DC3378PC	1	告の送付通知様式(PCT/ISA/220) を参照すること。
国際出願番号 PCT/JP00/04004	国際出願日 (日.月.年) 19.06.00	優先日 (日.月.年) 09.07.99
出願人(氏名又は名称) 大八化学コ	<b>工業株式会社</b>	
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される		条)の規定に従い出願人に送付する。
この国際調査報告は、全部で3	ページである。	
この調査報告に引用された先行打	<b>支術文献の写しも添付されている。</b>	
	(ほか、この国際出願がされたものに基づれた国際出願の翻訳文に基づき国際調査	
b. この国際出願は、ヌクレオチト この国際出願に含まれる書	、 マはアミノ酸配列を含んでおり、次の配 面による配列表	己列表に基づき国際調査を行った。
□ この国際出願と共に提出さ	れたフレキシブルディスクによる配列表	
□ 出願後に、この国際調査機	関に提出された書面による配列表	
	関に提出されたフレキシブルディスクに	
出願後に提出した薔面によ 	る配列表が出願時における国際出願の開	示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述
	た配列とフレキシブルディスクによる配	列表に記録した配列が同一である旨の陳述
2. 請求の範囲の一部の調査が	できない(第1欄参照)。	
3. 発明の単一性が欠如してい	、る(第Ⅱ欄参照)。	
4. 発明の名称は 🗓 出願	<b>5人が提出したものを承認する。</b>	
□ 次に	二示すように国際調査機関が作成した。	
5. 要約は 🗓 出願	<b>5人が提出したものを承認する。</b>	
国際		第47条 (PCT規則38.2(b)) の規定により 国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ なる。
6. 要約書とともに公表される図は、		. :
	<b>i</b> 人が示したとおりである。	
	人は図を示さなかった。	
本図	]は発明の特徴を一層よく表している。	

	Townson.		. ———	्र कार्यक्षास्त्र । । । । । । । । । । । । । । । । । । ।		
		•				
					,	
_						
•						
					•	
		•			,	
				•		
						•
·						
	•					
	•	•				
			3			
					· ·	
					•	
		•				
		•				
			•			
					·	
•						
	•				•	



			30/04004
	属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) ' C08K5/527, C08L101/0	0, C09K21/12	
D 翻木+	·		
	行った分野 最小限資料(国際特許分類(IPC))		
	' C08K3/00-13/08, C08L	1/00-101/16, C09K21	/12
最小限資料以	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用である。	用した電子データベース(データベースの名称 NLINE	、調査に使用した用語)	
C. 関連する	 ろと認められる文献		
引用文献の			関連する
カテゴリー*			請求の範囲の番号
A`	EP, 779332, A1 (HOE) 997 (08.07.97), 特許請求の範囲 & JP, 09-176376, A, & US, 5750601, A		1 - 8
А	JP, 6-321974, A (大八4月, 1994 (22, 11, 94), 特許請求の範囲 & EP, 617042, A1 &		1 — 8
X C欄の続き	にも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	川紙を参照。
もの 「E」国際に公 以後に公 「L」優先権主 文 政 可可 「O」口頭によ	のカテゴリー 国のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 国目前の出願または特許であるが、国際出願日 表表されたもの E張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 は他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) こる開示、使用、展示等に言及する文献 国目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表 て出願と矛盾するものではなく 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、 の新規性又は進歩性がないと考 「Y」特に関連のある文献であって、 上の文献との、当業者にとって よって進歩性がないとす 「&」同一パテントファミリー文献	、発明の原理又は理 当該文献のみで発明 えられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに
国際調査を完了	した日 30.06.00	国際調査報告の発送日	7.00
日本国 野	0名称及びあて先  特許庁(ISA/JP)  優番号100-8915  3千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 藤本 保 電話番号 03-3581-1101	内線 34.95

• \* 

.



	国際調査報告	700/04004
C (続き).	関連すると認められる文献	BPN-
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 52-89685, A (ミシガン・ケミカル・コーポレイョン) 27. 7月. 1977 (27. 07. 77), 特許請求の範囲 & US, 4049617, A & DE, 2701856, A	<i>→</i> 1 − 8
A	JP, 63-95249, A (三菱レイヨン株式会社) 26. 4月. 1988 (26. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 - 8
·		
	•	

•

.

# NT COOPERATION TREAT

### PCT

### NOTIFICATION OF TRANSMITTAL OF COPIES OF TRANSLATION OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

### From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NOGAWA, Shintaro Minamimorimachi Park Bldg. 1-3, Nishitenma 5-chome, Kita-ku Osaka-shi, Osaka 530-0047 **JAPON** 

Date of mailing (day/month/year)

06 December 2001 (06.12.01)

Applicant's or agent's file reference

DC3378PC

/ HS

International application No. PCT/JP00/04004

IMPORTANT NOTIFICATION

International filing date (day/month/year) 19 June 2000 (19.06.00)

**Applicant** 

DAIHACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD. et al.

### 1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

### 2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CN,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

JP

### 3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Eliott PERETTI

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Form PCT/IB/338 (July 1996)

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

# Trainslation



# $\mathbb{PCT}$

### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference DC3378PC	FOR FURTHER ACTION	SeeNotifica Examination	tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)		
International application No.	International filing date (day	/month/year)	Priority date (day/month/year)		
PCT/JP00/04004	19 June 2000 (19	.06.00)	09 July 1999 (09.07.99)		
International Patent Classification (IPC) or n C08K 5/527, C08L 101/00, C09					
Applicant DAIH.	ACHI CHEMICAL IND	USTRY CO.	, LTD.		
and is transmitted to the applicant accompand to the applicant accompand to the applicant accompand to the accompandation and the passion accompandation and are the base Rule 70.16 and Section 607 cc.	sheets, included by ANNEXES, i.e., sheets for this report and/or sheets of the Administrative Instruction	ling this cover sets of the descr	iption, claims and/or drawings which have tifications made before this Authority (see		
i nese annexes consist of a to	tal of sheets.				
IV Lack of unity of inve	of opinion with regard to nove ention under Article 35(2) with regar	d to novelty, in	ep and industrial applicability ventive step or industrial applicability;		
VI Certain documents c	ations supporting such stateme	ent			
VII Certain defects in the	e international application				
VIII Certain observations on the international application					
Date of submission of the demand	Date	of completion o	f this report		
26 July 2000 (26.07.0	00)	21 A	august 2000 (21.08.2000)		
Name and mailing address of the IPEA/JP	Autho	orized officer			
Facsimile No	Tolor	hona No			

	,	 t
		·
	•	



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

	<b>\</b>		
Y.	dional	application	No
_	_		

PCT/JP00/04004

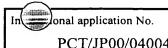
I.	Basis	of the re	port
1.	With	regard to	the elements of the international application:*
	$\boxtimes$	the inter	rnational application as originally filed
		the desc	cription:
		pages	, as originally filed
		pages	, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of
		- پاده مامنه	
	نــا	the clair	
		pages _	, as originally filed
		pages _	, as amended (together with any statement under Article 19
		pages _	, filed with the demand
	_	pages -	, filed with the letter of
		the draw	vings:
		pages	, as originally filed
		pages _	, filed with the demand
		pages _	, filed with the letter of
		the sequer	nce listing part of the description:
	ш.	pages	
		pages _	, as originally filed
		pages _	, filed with the letter of,
		-	
2.	the in	nternation	o the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which all application was filed, unless otherwise indicated under this item.  Its were available or furnished to this Authority in the following language which is:
			guage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
	$\sqcap$	·	guage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
	Ħ	_	guage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/
_		or 55.3)	
3.		minary ex	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international amination was carried out on the basis of the sequence listing:
	Щ	containe	ed in the international application in written form.
	Щ	filed tog	gether with the international application in computer readable form.
	Щ	furnishe	ed subsequently to this Authority in written form.
		furnishe	ed subsequently to this Authority in computer readable form.
			atement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the tional application as filed has been furnished.
			stement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has rnished.
4.		The ame	endments have resulted in the cancellation of:
			the description, pages
			the claims, Nos
			the drawings, sheets/fig
		·	ne drawings, sneets/rig
5.			ort has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**
	in thi		heets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16
**	Any r	eplaceme	ent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



.

.′





INTERNATIONAL PREL	AIVIINAKY EXAMINAII	ON KEPUKI	PCT/JP00/04004	
7. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement				
Statement				
Novelty (N)	Claims	1-8	YES	
	Claims		NO	
Inventive step (IS)	Claims	1-8	YE	
	Claims		NO	
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YE	
	Claims		NO	
Citations and explanations	ed in the ISR describes	the flame retardants of	the structure evaressed h	
None of the documents cit general formula (1) of clair considered that these featur	ns 1-8 and resin compos	sitions containing the said	d flame retardants, and it i	
considered that these featur basis of these documents.	es could not have easily	been conceived by a per-	son skilled in the art on the	





### 協力 条約

REC'D 12 SEP 2000 WIPO PCT

3495

電話番号 03-3581-1101 内線

PCT

### 国際予備審查報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 DC3378PC	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。					
国際出願番号 PCT/JP00/04004	国際出願日 (日.月.年) 19.06.00 優先日 (日.月.年) 09.07.99					
国際特許分類 (IPC) Int. Cl'	C08K5/527, C08L101/00, C09K21/12					
出願人(氏名又は名称) 大八化学工業	株式会社					
	国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。					
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。  □ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で ページである。						
3. この国際予備審査報告は、次の内容	3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。					
I X 国際予備審査報告の基礎						
Ⅱ 優先権						
Ⅲ Ⅲ 新規性、進歩性又は産業	Ⅲ					
IV 開の単一性の欠如						
V X PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明						
VI bる種の引用文献						
VII 国際出願の不備						
VII 国際出願に対する意見						
国際予備審査の請求書を受理した日 26.07.00	国際予備審査報告を作成した日 21.08.00					
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4者	特許庁審査官 (権限のある職員) 4 J 9 5 5 2 藤本 保 印					

			•
		ì	,
i <sub>y</sub> ,			





### 国際予備審査報告

1. 国際	予備審査報	 B告の <b>基礎</b>					
応答		提出された差し替え用紙は、			14条)の規定に基づく命令に 報告書には添付しない。		
X н	順時の国際	出願書類					
明		第 第 第	_ ページ、 _ ページ、 _ ページ、 _ ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と	,		
請	求の範囲 求の範囲	第 第  第	項、 項、 	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基 国際予備審査の請求書と	づき補正されたもの		
		第 	— ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、		共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの		
明	細書の配列	表の部分 第  表の部分 第  表の部分 第	ページ、 ページ、 ページ、 	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と	}		
2. 上記	の出願書類	(の言語は、下記に示す場合を	を除くほか、この	の国際出願の言語である。			
上記の書類は、下記の言語である 語である。							
	PCT規則	のために提出されたPCT規 則48.3(b)にいう国際公開の言 審査のために提出されたPC	言語		E .		
3. この	国際出願は	、ヌクレオチド又はアミノ酢	<b>愛配列を含んで</b> :	おり、次の配列表に基づき	国際予備審査報告を行った。		
	この国際は 出願後に、 出願後に、 出願後にも 書の提出が	があった る配列表に記載した配列とフ	シブルディスク 調査)機関に抗 調査)機関に抗 出願時における	出された書面による配列ま 出されたフレキシブルディ 国際出願の開示の範囲を起			
_		記の書類が削除された。 第					
	求の範囲  面	第 図面の第	項 ペー	ジ/図			
	るので、そ		として作成した	。(PCT規則70.2(c) こ	囲を越えてされたものと認めら の補正を含む差し替え用紙は上		

) .′

### 国際予備審査報告

. 見解			
, <i>7</i> 074			
新規性(N)	請求の範囲	1 - 8	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	1-8	
	請求の範囲		
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1-8	
	請求の範囲		<del></del>
文献及び説明(PCT規則70.7)			
	: ::	**************************************	7 th - 60 th
国際調査報告で引用したいず (I)で表される構造を有する ておらず、また、該文献の記載	れの文献にも、記 難燃剤及び該難り	清求の範囲1-8に言 然剤を含有する樹脂約	d載の一般式 B成物は記載され
ておらず、また、該文献の記載	から当業者が容	易に想到しうるもので	であるとも認めら
っない。			